

PATENT ABSTRACTS OF JAPAN

(11)Publication number : 2001-123081

(43)Date of publication of application : 08.05.2001

(51)Int.Cl. C08L101/16
C04B 26/12
H01B 1/24
H01M 8/02
//(C04B 26/12
C04B 14:36
C04B 14:42)

(21)Application number : 11-308248 (71)Applicant : SUMITOMO BAKELITE CO LTD

(22)Date of filing : 29.10.1999 (72)Inventor : SUZUKI TAKAYUKI
FUJII SHUNSUKE

(54) THERMOSETTING RESIN MOLDING MATERIAL AND MOLDING MADE THEREFROM

(57)Abstract:

PROBLEM TO BE SOLVED: To provide a thermosetting resin molding material having good moldability and excellent conductivity and mechanical strengths and, more particularly, to provide a molding, such as a fuel battery separator, having excellent conductivity and excellent strengths realized by good moldability.

SOLUTION: This material contains 10-35 wt.%, based on the entire molding material, thermosetting resin, 50-85 wt.% graphite, and 5-15 wt.% pulverization product of a glass fiber. It is desirable that the thermosetting resin is a resol phenolic resin. An electroconductive molding is provided which has a thickness of 0.5-5.0 mm and is prepared by molding the material.

LEGAL STATUS

[Date of request for examination]

[Date of sending the examiner's decision of rejection]

[Kind of final disposal of application other than
the examiner's decision of rejection or
application converted registration]

[Date of final disposal for application]

[Patent number]

[Date of registration]

[Number of appeal against examiner's
decision of rejection]

[Date of requesting appeal against examiner's
decision of rejection]

[Date of extinction of right]

(19)日本国特許庁 (JP)

(12) 公開特許公報 (A)

(11)特許出願公開番号

特開2001-123081

(P2001-123081A)

(43)公開日 平成13年5月8日(2001.5.8)

(51)Int.Cl.⁷
C 0 8 L 101/16
C 0 4 B 26/12
H 0 1 B 1/24
H 0 1 M 8/02

識別記号

F I
C 0 4 B 26/12
H 0 1 B 1/24
H 0 1 M 8/02
(C 0 4 B 26/12)

テ-マコード*(参考)
4 J 0 0 2
B 5 G 3 0 1
Z 5 H 0 2 6
B

審査請求 未請求 請求項の数 4 OL (全 4 頁) 最終頁に続く

(21)出願番号 特願平11-308248

(71)出願人 000002141

住友ペークライト株式会社
東京都品川区東品川2丁目5番8号

(22)出願日 平成11年10月29日(1999.10.29)

(72)発明者 鈴木 孝之

東京都品川区東品川2丁目5番8号 住友
ペークライト株式会社内

(72)発明者 藤井 俊介

東京都品川区東品川2丁目5番8号 住友
ペークライト株式会社内

最終頁に続く

(54)【発明の名称】 熱硬化性樹脂成形材料及びそれを用いた成形体

(57)【要約】

【課題】 本発明は、良好な成形を有し、導電性及び機械的強度に優れた熱硬化性樹脂成形材料を提供することを目的とするものである。更に詳しくは、導電性に優れ、成形性が良好であることにより強度に優れた燃料電池セパレーター等の成形品を提供することを目的とするものである。

【解決手段】 成形材料全体に対して、熱硬化性樹脂10～35重量%、黒鉛50～85重量%とガラス繊維の微粉碎物5～15重量%を含有してなることを特徴とする熱硬化性樹脂成形材料。

【特許請求の範囲】

【請求項1】 成形材料全体に対して、熱硬化性樹脂10～35重量%、黒鉛50～85重量%及びガラス繊維の微粉碎物5～15重量%を含有してなることを特徴とする熱硬化性樹脂成形材料。

【請求項2】 熱硬化性樹脂がレゾール型フェノール樹脂である請求項1記載の熱硬化性樹脂成形材料。

【請求項3】 燃料電池セパレーター用である請求項1又は2記載の熱硬化性樹脂成形材料。

【請求項4】 請求項1又は2記載の成形材料を成形してなり、成形体の厚みが0.5～5.0mmであることを特徴とする導電性成形体。

【発明の詳細な説明】

【0001】

【発明の属する技術分野】本発明は、黒鉛とガラス繊維の微粉碎物とを熱硬化性樹脂に混合することにより、良好な成形性を有し、機械的強度に優れた高電導性の熱硬化性樹脂成形材料及びその成形体に関するものであり、この成形材料は水素、アルコール等を燃料とする燃料電池のセパレーター等に好適なものである。

【0002】

【従来の技術】燃料電池は通常いくつかの単位電池を直列に接続して使用される。各電池間は電解液、ガス等に対して不通気性のセパレーターで仕切られている。セパレーターは電気に対しては高導電性であることが必要である。従来この種の材料としては黒鉛粉末に熱硬化性樹脂等の結合剤を加え、混練、成形、焼成し、さらに不通気性、電導性を向上させるため前記結合剤を含浸し、焼成したあと、切削加工して必要とする形状を得ていた。この方法は焼成しているので耐熱性が良好である利点があるが、焼成によって気孔が生ずるため、通常は液状の熱硬化性樹脂を含浸する工程が必要となり、また切削加工工程が必須条件でありコスト高になる欠点がある。

【0003】更に黒鉛粉末と熱硬化性樹脂を用いて成形したままで製品とする方法も提案されている（特公昭64-340号公報）。熱硬化性樹脂自体は電導性がないため、この成形体の電導性を高めるためには前記公報に記載されているように黒鉛粉末の添加量を増やす必要とともに樹脂の粘度と黒鉛粉末の粒度を調整する必要があるが、これだけでは実際の燃料電池のセパレーターのような複雑な形状をした成形品や大型で薄肉の成形品等を製造する場合には強度が低いためもろく壊れやすい欠点があった。

【0004】

【発明が解決しようとする課題】本発明は、上記のような欠点を改良するものであり、良好な成形を有し、導電性及び機械的強度に優れた熱硬化性樹脂成形材料を提供することを目的とするものである。更に詳しくは、導電性に優れ、成形性が良好であることにより強度に優れた燃料電池セパレーター等の成形品を提供することを目的

とするものである。具体例として、燃料電池セパレーターでは、導電性を示す体積抵抗率が 10^{-3} ～ $10^0 \Omega \cdot \text{cm}$ であり、かつ強度を示す曲げ強さが50MPa以上であるものを得ることを目的としている。

【0005】

【課題を解決する手段】本発明は、上記目的を達成すべく鋭意検討を行った結果、完成されたものであり、成形材料全体に対して、熱硬化性樹脂10～35重量%、黒鉛50～85重量%及びガラス繊維の微粉碎物5～15重量%を含有してなることを特徴とする熱硬化性樹脂成形材料に関するものである。

【0006】従来、燃料電池セパレーター用としては黒鉛の粒度と樹脂の粘度を調整することにより必要な導電性、不通気率等の特性を得ていた。しかし、これだけでは実際の燃料電池セパレーターのような複雑な形状をした成形品や大型で薄肉の成形品等を製造する場合には強度が低いためもろく壊れやすい欠点があった。本発明は、これに特定量のガラス繊維の粉碎物を添加することにより、流動性を維持しながら導電性と強度を両立した成形材料を開発したものである。

【0007】以下、本発明について詳細に説明する。本発明を実施するには、例えば、黒鉛、ガラス繊維の微粉碎物及び微粉碎した熱硬化性樹脂をヘンシェルミキサーのような混練機械で均一に混合する。得られた組成物はそのままでも高導電性を有しているが、更に均一で良好な導電性を付与する為には熱硬化性樹脂組成物の粒子を一旦 $100 \mu\text{m}$ 以下に微粉末化することが好ましい。組成物の粒子が $100 \mu\text{m}$ を越えると、導電性にバラツキが生じやすく、また高導電性も得られにくい。更には、加熱ロール等で十分な加圧混練をすることにより、より均一な導電性を得ることができる。

【0008】組成物中の各成分の割合は、熱硬化性樹脂10～35重量%、黒鉛50～85重量%及びガラス繊維の微粉碎物5～15重量%である。熱硬化性樹脂が10重量%未満であると、流動性が低下するため成形加工性が厳しくなり、35重量%を超えると十分な導電性を得られない。黒鉛が50重量%未満では導電性に乏しく、85重量%を超えると流動性が低下するため成形加工性に難点がある。また、ガラス繊維の微粉碎物が5重量%未満では導電性に影響は無いが成形品としての強度が不十分であり、15重量%を超えると導電性が低下するようになる。本発明では 10^{-3} ～ $10^{-1} \Omega \cdot \text{cm}$ の高導電性と優れた強度を得るために、黒鉛とガラス繊維の微粉碎物との配合量が60～90重量%の範囲であることが好ましい。

【0009】本発明で使用できる黒鉛としては特に限定されない。例えば鱗片状、塊状、土状等の天然黒鉛や人造黒鉛が使用できる。また、ガラス繊維の微粉碎物は従来使用されているガラス繊維を微粉碎したものであり、通常繊維径 $20 \mu\text{m}$ 以下、繊維長 $350 \mu\text{m}$ 以下であ

る。纖維径 $20\mu\text{m}$ を越えると、強度向上の効果が不十分であり、纖維長 $350\mu\text{m}$ を越えると流動性が大幅に低下する。好ましくは、纖維長 $250\mu\text{m}$ 以下で未集束のものが使用される。通常の集束したガラス纖維では、混練段階でガラス纖維が毛玉状になり易く、また成形段階では纖維形状のために流動阻害が生じ、流動性が低下する。また、集束したガラス纖維では成形品の表面粗度が大きいため、外観の低下を招き、燃料電池のセパレーターでは必要特性の1つである接触抵抗を低下させる恐れがある。従って、未集束ガラス纖維の微粉碎品が好ましく使用される。また、纖維長 $250\mu\text{m}$ 以下とすることにより、更に流動性が良好となる。

【0010】本発明で使用できる熱硬化性樹脂としては、常温で固体であるものが使用できる。例えばフェノール樹脂、エポキシ樹脂、不飽和ポリエチル樹脂等が用いられる。耐熱性のよいフェノール樹脂、エポキシ樹脂が好ましく、フェノール樹脂では、成形時にアンモニアが発生せず、成形品中に残存しないという点でレゾール型フェノール樹脂が好ましい。

【0011】次に、本発明の熱硬化性樹脂成形材料を製造する方法について、その一例を詳しく説明すると、黒鉛、ガラス纖維の微粉碎物、微粉碎した熱硬化性樹脂、及び離型剤をヘンシェルミキサーにて均一に混合する。この混合組成物はこのままでも成形加工できるが、更に取り扱いを容易にし、高度な導電性を得るために加熱ロール等で成形材料化し破碎する。必要により顆粒状にすることもできる。導電性、強度を損なわない範囲で、黒鉛の代わりにカーボンブラック、炭素纖維等の導電性の充

填材を一部使用することも可能であり、無機充填材も一部併用使用することができる。

【0012】このようにして得られた熱硬化性樹脂成形材料は通常の熱硬化性の成形機で成形でき、例えば、金型温度 $130\sim180^\circ\text{C}$ 、成形圧力 $200\sim800\text{kg/cm}^2$ の条件で、 $300\times300\times2\text{mm}$ の大きさの成形品を容易に得ることができる。

【0013】

【実施例】以下本発明を実施例により詳しく説明する。

【0014】実施例1~3、比較例1~3

表1に示したように、黒鉛、ガラス纖維の微粉碎物、離型剤としてステアリン酸、及びフェノール樹脂として、ジメチレンエーテル型レゾールフェノール樹脂（数平均分子量700、融点 80°C ）をヘンシェルミキサーにて混合して組成物を得た。これらの組成物を 80°C の加熱ロールで溶融混練後取り出し、顆粒状に粉碎して成形材料を得た。かかる成形材料を金型温度 170°C 、成形圧力 200kg/cm^2 、成形時間3分で圧縮成形して $300\times300\times2\text{mm}$ の大きさの成形品を得た。得られた成形品の特性を表1下段に示す。

【0015】（測定方法）成形品外観は、目視による観察であり、良は表面平滑で光沢がある。不良はガラス纖維による筋が見られ凹凸が認められる。体積固有抵抗は、JIS K 7194により測定した。曲げ強さは、JIS K 7203により測定した。モノホール流動性は、JIS K 6911により測定した。

【0016】

【表1】

項目	単位	実施例1	実施例2	実施例3	比較例1	比較例2	比較例3
フェノール樹脂	%	18.0	13.0	18.0	23.0	18.0	23.0
離型剤	%	2.0	2.0	2.0	2.0	2.0	2.0
黒鉛 *1)	%	75.0	80.0	0.0	75.0	80.0	0.0
黒鉛 *2)	%	0.0	0.0	75.0	0.0	0.0	75.0
ガラス纖維 *3)	%	0.0	0.0	0.0	5.0	0.0	0.0
ガラス纖維 破碎物 *4)	%	5.0	5.0	5.0	0.0	0.0	0.0
成形品外観	-	良	良	良	不良	良	良
体積固有抵抗	$\text{m}^3\cdot\text{cm}$	20	15	40	20	15	40
曲げ強さ	MPa	90	90	80	100	40	40
モノホールによる流動性	g	40	40	30	15	30	30

【0017】* 1) 黒鉛：

人造黒鉛：平均粒径 $120\mu\text{m}$ （篩分）、比表面積 $0.60\text{m}^2/\text{g}$

* 2) 黒鉛：

鱗状黒鉛：平均粒径 $130\mu\text{m}$ （篩分）、比表面積 $1.25\text{m}^2/\text{g}$

* 3) ガラス纖維 :

平均纖維径 10 μm、平均纖維長 1.5 mm

* 4) ガラス纖維の微粉碎物 :

平均纖維径 10 μm、平均纖維長 200 μm

【0018】

【発明の効果】 以上の説明から明らかなように、本発明

の熱硬化性樹脂成形材料は、機械的強度に優れた高電導性の熱硬化性樹脂成形材料であり、成形性に優れていることから薄肉の成形体を得ることができる。従って、水素、アルコール等を燃料とする燃料電池のセパレーター等の成形品を容易に製造することができるため、工業的な導電性樹脂成形材料として好適である。

フロントページの続き

(51) Int.Cl. ⁷	識別記号	F I	(参考)
//(C 04 B 26/12 14:36 14:42)		C 04 B 14:36 14:42) C 08 L 101/00	Z

F ターム(参考) 4J002 CC031 CD001 CF211 DA026
DL007 FA016 FA047 FD116
GQ02 HA09
5G301 DA19 DA34 DA55 DD08 DD10
5H026 AA08 BB01 BB03 BB06 BB08
CX04 EE06 EE12 EE18